

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-033107

(43)Date of publication of application : 31.01.2002

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
C01B 31/04  
C04B 35/52  
// H01M 8/10

(21)Application number : 2000-217043

(71)Applicant : UBE IND LTD

(22)Date of filing : 18.07.2000

(72)Inventor : OYA NOBUO  
YAO SHIGERU  
ASANO YUKIHIKO

## (54) SEPARATOR FOR FUEL CELL

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a material for a fuel cell, in particular, a separator therefor capable of being easily thinned, having excellent mechanical strength, gas impermeability, electrical conductivity, heat resistance, corrosion resistance and thermal conductivity, and capable of being easily manufactured with a high yield.

SOLUTION: This separator for the fuel cell having excellent mechanical strength, electrical conductivity, heat resistance, corrosion resistance and thermal conductivity due to high graphitization rate and having high gas impermeability as compared with a normal graphite material can be provided by composing it of a carbonaceous structural body having a high graphitization rate obtained by heating and carbonating polyimide film. The separator can easily be manufactured with a high yield and particularly easily be thinned by heating, carbonating and integrating a layered product of polyimide film. In addition, the need of post-processing for forming a gas passage groove is obviated by heating, carbonating and integrating the layered product laminated by including the polyimide film from which a part to become the gas passage groove is previously removed.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the  
examiner's decision of rejection or application  
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of  
rejection][Date of requesting appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2002-33107  
(P2002-33107A)

(43) 公開日 平成14年1月31日 (2002.1.31)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 4 G 0 3 2
C 0 1 B 31/04	1 0 1	C 0 1 B 31/04	1 0 1 Z 4 G 0 4 6
C 0 4 B 35/52		H 0 1 M 8/10	5 H 0 2 6
// H 0 1 M 8/10		C 0 4 B 35/54	A

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願2000-217043(P2000-217043)	(71) 出願人	000000206 宇部興産株式会社 山口県宇部市大字小串1978番地の96
(22) 出願日	平成12年7月18日 (2000.7.18)	(72) 発明者	大矢 修生 千葉県市原市五井南海岸8番の1 宇部興産株式会社高分子研究所内
		(72) 発明者	八尾 滋 千葉県市原市五井南海岸8番の1 宇部興産株式会社高分子研究所内
		(72) 発明者	浅野 之彦 千葉県市原市五井南海岸8番の1 宇部興産株式会社高分子研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

(57) 【要約】

【課題】 薄肉化が容易であり、機械的強度、ガス不透過性、導電性、耐熱性、耐腐食性、及び、熱伝導性が優れ、歩留まりよく容易に製造することができる燃料電池用部材、特に燃料電池用セパレータを提供すること。

【解決手段】 ポリイミドフィルムを加熱炭化して得られる黒鉛化率が高い炭素構造体により構成することによって、高い黒鉛化率による優れた機械的強度、導電性、耐熱性、耐腐食性、及び、熱伝導性を備え、通常の黒鉛材と比べてガス不透過性が高い燃料電池用セパレータを提供できる。また、ポリイミドフィルムの積層体を加熱炭化し一体化することによって歩留まりよく容易に製造でき、特に薄肉化が容易である。更に、予めガス流路溝となる部分を削除したポリイミドフィルムを含んで積層した積層体を加熱炭化し一体化することによって、ガス流路溝を形成するための後加工が不要となる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】ポリイミドフィルムを嫌気性雰囲気下で加熱炭化して得られた黒鉛化率が 50%以上の炭素構造体からなる燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】ポリイミドフィルムのテトラカルボン酸成分が 3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸類であることを特徴とする前記請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】ポリイミドフィルムのジアミン成分がジアニノベンゼンであることを特徴とする前記請求項 1～2

【請求項 4】ポリイミドフィルムの複数枚を積層した積層体を嫌気性雰囲気下で加熱炭化して一体化して得られた炭素構造体からなることを特徴とする前記請求項 1～3

【請求項 5】ポリイミドフィルムの厚さが 5～100 μmであることを特徴とする前記請求項 1～4 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 6】1枚以上のポリイミドフィルムと1枚以上のガス流路溝になる部分を削除したポリイミドフィルムとを積層した積層体を嫌気性雰囲気下で加熱炭化して一体化して得られた炭素構造体からなることを特徴とする前記請求項 1～5 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用部材に関する。特に固体高分子電解質型燃料電池において好適に用いることができるポリイミドフィルムを加熱炭化して得られた燃料電池用セパレータに関する。

## 【0002】

【従来の技術】近年、固体高分子電解質型燃料電池の開発および実用化が進んでいる。固体高分子電解質型燃料電池は、固体高分子電解質膜とその両側に設けられた電極とそれぞれの電極に水素等の燃料ガスあるいは酸素等の酸化剤ガスを供給したりドレインガスを排出するためにガス流路溝を備えたセパレータなどからなる単セルを積層したスタック、及び、前記スタックの外側に設けられた集電体などから構成されている。

【0003】前記セパレータには、構造材料としての機械的強度と、燃料ガスと酸化剤ガスを完全に分離してそれぞれの電極へ供給するために高度のガス不透過性と、電極で発生する電流を集電体へ流す導電性と、それぞれの電極での酸化及び還元雰囲気下での耐腐食性と、使用温度での耐熱性、電池反応に伴う発熱を効率よく放散させ電池内温度分布を均一化するための高い熱伝導性などの特性が要求され、更に、電池のコンパクト化や体積当たりの発電効率を高めるために厚さ 1.0 mm 以下の薄肉化が要求されている。

【0004】特開平 4-267062 号公報ではセパ

レータの材質を純銅やステンレス鋼などで構成する例が開示されている。しかしながら、これらの金属系の材料では燃料ガスとして用いる水素ガスとの長時間に亘って接触するために、水素脆性が生じて材質劣化がおこり電池性能が悪化する欠点があった。

【0005】また、特開平 3-84865 号公報では芳香族ポリイミド樹脂のフィルム状成形体を焼成炭化したガラス状カーボン質からなる燃料電池用セパレータについて開示している。開示されたセパレータはポリイミド先駆体の溶液をモールド中でイミド化してポリイミド成形体としたあとで前記成形体を焼成炭化したものであった。しかしながら、ガラス状カーボン材は緻密な組織構造を有し高いガス不透過性を示すが、硬度が高く脆性であるので加工性が悪くまた熱伝導率が低く電気抵抗も大きいという難点があった。特に高電流密度で運転される固体高分子型燃料電池用セパレータとして用いるのは適当でなかった。

【0006】このため、ガラス状カーボンに比べ熱伝導率が高く電気抵抗が低いのでセパレータとして優れた熱伝導性、導電性、耐腐食性を持つ黒鉛材を用いることが検討されている。しかし、通常の黒鉛材である人造黒鉛、天然黒鉛、膨張黒鉛などは組織中に微細な気孔空隙が多数存在するためガス不透過性が低く、黒鉛材をそのまま燃料電池用セパレータとして使用することはできない。このために、前記黒鉛材の気孔空隙に熱硬化性樹脂を含浸し加熱硬化する方法によって気孔空隙を閉塞させてガス不透過性にする試みがなされている。例えば、特開平 8-222241 号公報では、炭素質粉末と結合材を加熱混練後 CIP 成形し、次いで焼成黒鉛化して得られた黒鉛材に熱硬化性材料を含浸して硬化処理した燃料電池用黒鉛部材が開示されている。しかしながら、このような方法ではガス不透過性にする樹脂の存在によって改良されるガス不透過性と、樹脂の存在によって低下する熱伝導性、導電性、耐腐食性などの性能とをバランスよく備えたセパレータを製造することは難しく充分な性能ではなかった。

【0007】さらに、セパレータは電極と接する部分にガスが電極面全体で均一に供給かつ排出できるように非常に微細で複雑なガス流路溝を備える。通常は前記のような黒鉛部材のシートの表面を切削加工することによって流路溝が形成される。しかし、該切削加工は薄肉の黒鉛材シート表面に微細で複雑な溝を切削して形成するのであり極めて困難で歩留まりが低いなどの問題があった。

【0008】これに対し、最近、比較的ガス不透過性が高い膨張黒鉛からなる可撓性黒鉛シートを圧縮成形することによって流路溝を備えるセパレータを形成する方法が検討されているが、この方法で形成されたセパレータは、圧縮されて高密度化された部分のガス不透過性は高くなるものの、圧縮されずに高密度化されない部分では

ガス透過性が存在するために安定した品質のものを得ることは難しいものであった。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、薄肉で、機械的強度、ガス不透過性、導電性、耐熱性、耐腐食性、及び、熱伝導性が優れ、歩留まりよく容易に製造することができる燃料電池用部材、特に燃料電池用セパレータを提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明は上述のような状況に鑑みてなされたものである。本発明は、ポリイミドフィルムを加熱炭化して得られた黒鉛化率が高い炭素構造体が、高い黒鉛化率によって黒鉛材が持つ優れた機械的強度、導電性、耐熱性、耐腐食性、及び、熱伝導性を備え、かつ、通常黒鉛材の欠点であるガス透過性を持たないガス不透過性が高い炭素構造体であることを見出すことによって創製された。すなわち、本発明は、ポリイミドフィルムを嫌気性雰囲気下で加熱炭化して得られた黒鉛化率が50%以上の炭素構造体からなる燃料電池用セパレータに関する。また、ポリイミドフィルムのテトラカルボン酸成分が3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸類であること、ジアミン成分がジアミノベンゼンであること、ポリイミドフィルムの複数枚を積層した積層体を嫌気性雰囲気下で加熱炭化して一体化して得られた炭素構造体からなること、ポリイミドフィルムの厚さが100μm以下であることを特徴とする燃料電池用セパレータに関する。更に、1枚以上のポリイミドフィルムと、1枚以上のガス流路溝になる部分を削除したポリイミドフィルムとを積層した積層体を嫌気性雰囲気下で加熱炭化して得られた黒鉛化率が50%以上の炭素構造体からなる燃料電池用セパレータに関する。

【0011】

【発明の実施の形態】本発明の燃料電池用セパレータは、緻密なポリイミドフィルムを嫌気性雰囲気下で加熱炭化して実質的に炭素からなる緻密で黒鉛化率が高い炭素構造体として得られたセパレータである。特に、黒鉛化率が50%以上の炭素構造体であることによって、機械的強度やガス不透過性などのセパレータとして要求される特性が極めて優れたものである。また、本発明の燃料電池用セパレータは、緻密なポリイミドフィルムの複数枚を積層した積層体を嫌気性雰囲気下で加熱炭化して一体化した炭素構造体として得られたものであり、更に、本発明の燃料電池用セパレータは、緻密なポリイミドフィルムと予めガス流路溝になる部分を削除したポリイミドフィルムとを積層したポリイミド積層体を嫌気性雰囲気下で加熱炭化して一体化した黒鉛化率が50%以上でガス流路溝を備えた炭素構造体として得られたものである。

【0012】本発明のポリイミドフィルムはポリイミド分子間の凝集性や配向性が高く比較的高い融点を持つ

(或いは融点を示さない)芳香族ポリイミドが好ましい。このようなポリイミドフィルムを加熱炭化するとポリマーの分子配列を保持しながら炭化が進行するので緻密で黒鉛化率が高い炭素構造体になり易い。分子間の凝集性や配向性が低い低融点ポリイミドを加熱炭化すると、黒鉛化が進むよりも先に分子が乱れて、炭化しても黒鉛化が抑制されると考えられる。

【0013】前記ポリイミドフィルムは、特に限定しないが次のようにして製造することができる。略等モルの芳香族テトラカルボン酸成分と芳香族ジアミン成分を有機溶媒中で重合して得られたポリイミド前駆体(ポリアミック酸溶液或いはその部分的にイミド化したもの)溶液を調整する。この溶液の対数粘度(30℃、濃度; 0.5g/100mL NMP)は0.3以上特に0.5~7が好ましく、溶媒はN-メチルピロリドン(NMP)、パラクロロフェノール、フェノール、ピリジン、N,N-ジメチルアセトアミド、N,N-ジメチルホルムアミドなどであり、溶液濃度はポリイミド前駆体が0.3~60重量%好ましくは1~30重量%のものである。ポリイミドフィルムはこの溶液を流延し加熱して熱イミド化し溶媒を除去することによって製造することができる。イミド化は化学イミド化によってもおこなうことができる。流延するポリイミド前駆体溶液の溶液粘度は10~10000ポイズ、好ましくは40~3000ポイズである。溶液粘度が10ポイズより小さいと溶液を流延した際に流延厚みが容易に変化してしまい、均一な厚みのフィルムを得ることが容易ではないので適当でなく、10000ポイズより大きいとフィルム状に流延することが困難になるので適当ではない。

【0014】前記ポリイミドフィルムのテトラカルボン酸成分としては、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(以下、S-BPDAと略す)及び3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸及びその塩及びそのエステル化誘導体などの3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸類が好ましいが、2, 3, 3', 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、ピロメリット酸、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸、2, 2-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)プロパン、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)スルホン、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エーテル、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)チオエーテル及びそれらの二無水物及びそれらの塩及びそれらのエステル化誘導体であってもよい。また上記の各テトラカルボン酸類の混合物であってもよい。

【0015】前記ポリイミドフィルムのジアミン成分としては、ジアミノベンゼンであることが好ましく特に1, 4-ジアミノベンゼン及び1, 3-ジアミノベンゼンが好ましいが、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 3'-ジエトキシ-4, 4'-ジアミ

ノジフェニルエーテル、2, 6-ジアミノピリジン、3, 6-ジアミノピリジン、2, 5-ジアミノピリジン、3, 4-ジアミノピリジンであってもよい。また上記各ジアミンの混合物であってもよい。

【0016】テトラカルボン酸成分が3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸類でありジアミン成分がジアミノベンゼンであるポリイミドフィルムは前駆体溶液の調整が容易であり均一な膜厚を持つ緻密なポリイミドフィルムを容易に得ることができる。しかも得られたポリイミドフィルムは加熱炭化したときに緻密で黒鉛化率が高い炭素構造体を形成し易いので本発明においては好適である。

【0017】前記のようにして製造されたポリイミドフィルムの厚みは通常5~500 $\mu$ mのものであるが、本発明で用いるポリイミドフィルムは5~100 $\mu$ mの厚みのものが好適であり、更に5~60 $\mu$ mの厚みのものが好ましく、特に5~30 $\mu$ mの厚みのものが好ましい。ポリイミドフィルムを加熱炭化して炭素構造体を製造する場合、元のポリイミドフィルムの厚みが薄いものほど黒鉛化率が高くなる傾向があるので機械的強度やガス不透過性が優れたセパレータを得ることができる。

【0018】従って、本発明においては、1枚の厚いポリイミドフィルムを加熱炭化して炭素構造体にするよりも薄いポリイミドフィルムを多数積層した積層体を加熱炭化したものの方が黒鉛化率が高く機械的強度やガス不透過性が優れたセパレータを得ることができるので好適である。またポリイミドフィルムを積層した積層体を加熱炭化すると炭化過程で各フィルム層が一体化して一体構造の炭素構造体とすることができる。

【0019】本発明のポリイミドフィルムには加熱炭化するとき黒鉛化を促進させる効果を有するホウ素化合物などを加えるのが好適である。これらの化合物を予めポリイミド前駆体溶液中に分散しておいて、該溶液を流延してフィルム化することによってポリイミドフィルム中にうまく分散することが可能である。

【0020】本発明において、ポリイミドフィルムを積層した積層体を加熱炭化する場合に、1枚以上のポリイミドフィルムと、1枚以上のセパレータの燃料ガスあるいは酸素等の酸化剤ガスあるいはドレインガスのガス流路の溝となる部分を予め削除したポリイミドフィルムとを積層した積層体を加熱炭化してガス流路溝を有する炭素構造体とすることが好適である。前記炭素構造体はガス流路溝を切削した後加工が不要となる。セパレータのガス流路溝となる部分を予め削除したポリイミドフィルムはポリイミドフィルムをパンチングするなどして容易に得ることができる。

【0021】本発明において、ポリイミドフィルム及びポリイミドフィルム積層体の加熱炭化は酸素など酸化活性の気体がない嫌気性雰囲気下でおこなわれる。嫌気性雰囲気は、窒素ガス、アルゴンガス、ヘリウムガスなど

の不活性ガス中か、真空中などが適当である。急激に昇温するのは、分解物が散逸したり炭素分が留去して炭化収率が低くなることがあっては好ましくなくまた構造欠陥もできやすい。そのために昇温速度は20 $^{\circ}$ C/分以下、特に1~10 $^{\circ}$ C/分程度の十分遅い速度で昇温して徐々に炭化するのが好ましい。加熱温度は2400~3500 $^{\circ}$ C、特に2600~3000 $^{\circ}$ Cの範囲が好ましく、前記温度範囲で20~180分間が好適である。前記の加熱炭化によって黒鉛化率が50%以上の炭素構造物を好適に得ることができる。

【0022】前記の加熱炭化の際に加熱と同時に圧力を加えると黒鉛化率が高い炭素構造体を得られるので好ましい。加熱炭化中のポリイミドフィルムの収縮などに伴う形状の変化を抑え、ポリイミド分子の部分的に炭素化されつつある炭素部分の配向性を高めるために、得られた炭素構造体は緻密で黒鉛化率が高くなり、機械的強度やガス不透過性が優れたものになる。また複数のポリイミドを積層した積層体を加熱炭化して容易に一体構造の炭素構造体とすることが可能になる。圧力は1~250MPa特に100~250MPaで印加するのがよい。加圧は高温圧縮機や等方圧熱間プレス(HIP)を用いて好適におこなわれる。

【0023】本発明のセパレータは黒鉛化率が50%以上の炭素構造体であり、好ましくは黒鉛化率が70%以上の炭素構造体であり、特に好ましくは黒鉛化率が90%以上の炭素構造体である。黒鉛化率が高い炭素構造体は機械的強度が大きく、ガス不透過率が高いものであるから、肉薄でもセパレータとして要求される強度やガス不透過性を満足できるセパレータとなる。

【0024】本発明の炭素構造体は、優れた機械的強度、導電性、熱伝導性、耐腐食性などを有するので、燃料電池用のセパレータ以外の部材、例えば、集電体として用いることも好適である。

【0025】本発明において、溶液粘度は温度25 $^{\circ}$ CでE回転型粘度計を用いて測定した。炭素構造体の黒鉛化率はX線回折を測定しRu1and法により求めた。引張強度は温度23 $^{\circ}$ Cで、チャック間距離30mm、引張速度1mm/minの引張試験をおこなって求めた。ガス透過係数は、試験気体に空気をを用い、温度30 $^{\circ}$ CでJISK7126の差圧法に準じて測定した。

【0026】

【実施例】以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0027】(参考例1)

(ポリイミドフィルムの製造) テトラカルボン酸成分としてS-BPDAを、ジアミン成分として1, 4-ジアミノベンゼンを用い、S-BPDAに対する1, 4-ジアミノベンゼンのモル比が0.996でかつ該モノマー成分の合計重量が18重量%になるようにN-メチル-

10

20

30

40

50

ピロリドン (NMP) に溶解し、温度 40℃ で 10 時間重合をおこなってポリイミド前駆体溶液を得た。ポリイミド前駆体溶液の溶液粘度は 1500 ポイズであった。得られたポリイミド前駆体溶液をガラス板上に厚みが 120 μm になるように流延し、大気中にて温度 400℃、10 分間熱処理をおこなうことにより厚さ 30 μm のポリイミドフィルムを得た。

【0028】(実施例 1) 参考例 1 で得たポリイミドフィルムを 20 枚積層したものと、前記ポリイミドフィルムを 10 枚を積層してスタンピングによりガス流路溝となる部分を打ち抜いて除去したものとを積層したポリイミドフィルム積層体を、アルゴンガスの気流下中で、通気性の炭素シートで両面を挟んで 1 MPa の圧力で加圧しながら昇温速度 10℃/分 で 20℃ から 1000℃ まで昇温しさらに圧力 200 MPa、昇温速度 5℃/分 で 3000℃ まで昇温し 60 分間保持した。降温後、表面に流路溝を有する一体構造の炭素構造体を得られた。前記構造体は緻密で表面光沢があり可撓性で強靱であり、また、厚さは 520 μm、ガス流路溝の深さは 240 μm、みかけ密度は 1775 kg/m<sup>3</sup>、黒鉛化率は 95% 以上であった。同時に製造した流路溝のない炭素構造体について、引張強度を測定したところ 300 MPa 以上であり、ガス透過係数は  $1 \times 10^{-4}$  cm<sup>3</sup>/sec · atm 以下であった。

【0029】(参考例 2)

(ポリイミドフィルムの製造) 前記参考例 1 で得られたポリイミド前駆体溶液に、粒子径が 20 μm 以下の炭化ホウ酸粉末をポリイミド前駆体に対し 5 重量% になるように計りとって加え均一になるまで攪拌した。炭化ホウ酸は加熱炭化するときに結晶化を促進する効果を持っている。得られた炭化ホウ酸粉末分散ポリイミド前駆体溶液をガラス板上に厚みが 120 μm になるように流延し、大気中にて温度 400℃、10 分間熱処理をおこなうことにより厚さ 30 μm の炭化ホウ酸粉末分散ポリイミドフィルムを得た。

【0030】(実施例 2) 参考例 2 で得た炭化ホウ酸粉末分散ポリイミドフィルムを 20 枚積層したものと、前記ポリイミドフィルムを 10 枚を積層してスタンピングによりガス流路溝となる部分を打ち抜いて除去したものとを積層したポリイミドフィルム積層体を、アルゴンガスの気流下中で、通気性の炭素シートで両面を挟んで 1 MPa の圧力で加圧しながら昇温速度 10℃/分 で 20℃ から 1000℃ まで昇温しさらに、圧力 200 MPa、昇温速度 5℃/分 で 3000℃ まで昇温し 60 分間保持した。降温後、表面に流路溝を有する一体構造の炭素構造体を得られた。前記構造体は緻密で表面光沢があり可撓性で強靱であり、また、厚さは 500 μm、ガス流路溝の深さは 235 μm、みかけ密度は 1800 kg

/m<sup>3</sup>、黒鉛化率は 95% 以上であった。同時に製造した流路溝のない炭素構造体について、引張強度を測定したところ 350 MPa 以上であり、ガス透過係数は  $1 \times 10^{-4}$  cm<sup>3</sup>/sec · atm 以下であった。

【0031】(参考例 3)

(ポリイミドフィルムの製造) テトラカルボン酸成分として S-BPDA を、ジアミン成分として 4, 4'-ジアミノジフェニルエーテルを用い、S-BPDA に対する 4, 4'-ジアミノジフェニルエーテルのモル比が 0.996 でかつ該モノマー成分の合計重量が 18 重量% になるように N-メチルピロリドン (NMP) に溶解し、温度 40℃ で 10 時間重合をおこなってポリイミド前駆体溶液を得た。ポリイミド前駆体溶液の溶液粘度は 1600 ポイズであった。得られたポリイミド前駆体溶液をガラス板上に厚みが 120 μm になるように流延し、大気中にて温度 400℃、10 分間熱処理をおこなうことにより厚さ 30 μm のポリイミドフィルムを得た。

【0032】(比較例 1) 参考例 3 で得たポリイミドフィルムを 20 枚積層したものと、前記ポリイミドフィルムを 10 枚を積層してスタンピングによりガス流路溝となる部分を打ち抜いて除去したものとを積層したポリイミドフィルム積層体を、アルゴンガスの気流下中で、通気性の炭素シートで両面を挟んで 1 MPa の圧力で加圧しながら昇温速度 10℃/分 で 20℃ から 1200℃ まで昇温し 180 分間保持した。降温後、得られた炭素構造体は黒鉛化率は 38% で脆弱であり可撓性が乏しいものであった。同時に製造した流路溝のない炭素構造体について、引張強度を測定したところ 100 MPa であり、ガス透過係数は  $2 \times 10^{-5}$  cm<sup>3</sup>/sec · atm であった。

【0033】

【発明の効果】本発明は以上説明したようなものであるから、以下に述べるような効果を奏する。本発明の燃料電池用セパレータは、ポリイミドフィルムを加熱炭化して得られた黒鉛化率が高い炭素構造体から構成されたものであり、高い黒鉛化率によって優れた機械的強度、耐熱性、耐腐食性、及び、熱伝導性を備え、かつ、通常の高黒鉛材の欠点であるガス透過性を持たないガス不透過性が高いものである。また、ポリイミドフィルムの積層体を加熱炭化して一体化したものであるから歩留まりよく容易に製造できるものであり、特に薄肉化が容易なものである。更に、本発明の燃料電池用セパレータは、ポリイミドフィルムからガス流路溝となる部分を削除して積層した積層体を加熱炭化して一体化したものであり、ガス流路溝を形成するための微細な後加工が不要なものである。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4G032 AA04 BA04 GA12 GA15  
4G046 EA03 EB02 EB04 EC05  
5H026 AA06 BB01 CC03 EE05 EE06  
HH03